3-14-00

# IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant:

YOSHIMURA et al.

Docket:

13041.3US01

Title:

AQUEOUS GLITTERING INK COMPOSITION

CERTIFICATE UNDER 37 CFR 1.10

'Express Mail' mailing label number: EL435542039US

Date of Deposit. 13 March 2000

I hereby certify that this paper or fee is being deposited with the United States Postal Service 'Express Mail Post Office To Addressee' service under 37 CFR 1.10 and is addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C.

Name: Linda McCormick

**BOX PATENT APPLICATION Assistant Commissioner for Patents** Washington, D.C. 20231

Sir:

We are transmitting herewith the attached:

Transmittal sheet, in duplicate, containing Certificate under 37 CFR 1.10.

Utility Patent Application: Spec. 34 pgs; 21 claims; Abstract 1 pgs.:

A signed Combined Declaration and Power of Attorney

Other: Communication regarding Priority Documents, Communication regarding Submission of Foreign Language Specification, Communication regarding Change of Address for Applicants' Attorney-of-Record

Return postcard

 $\overline{oxtimes}$  PAYMENT OF THE FILING FEE IS BEING DEFERRED.

MERCHANT & GOULD P.C. P.O. Box 2903, Minneapolis, MN 55402-0903

(612) 332-5300

Name: Douglas P. Mueller

Reg. No.: 30,300 Initials: DPM/klj

# MERCHANT, GOULD, SMITH, EDELL, WELTER & SCHMIDT

# **United States Patent Application**

# COMBINED DECLARATION AND POWER OF ATTORNEY

As a below named inventor I hereby declare that: my residence, post office address and citizenship are as stated below next to my name; that

| are                                  | named below) of the subject  | e original, first and sole inventor<br>matter which is claimed and for<br>SGLITTERING INK COM  | which a patent is sough  |  | joint inventor (if plural inventors on entitled:   |
|--------------------------------------|--|--|--|--|--|
| a. [<br>b. [<br>app                  |  | as application serial -filed application) described and (if any), which I have revi  |  |  |  |
| I he                                 |  | ed and understand the contents o   |  |  | cluding the claims, as amended by  |
| of F<br>I he<br>cent<br>that<br>a. L | rederal Regulations, § 1.56 (a<br>reby claim foreign priority b<br>ificate listed below and have<br>of the application on the bas<br>no such applications have<br>such applications have bee | enttached hereto).  enefits under Title 35, United State also identified below any foreign is of which priority is claimed:  been filed.  en filed as follows: | ates Code, § 119/365 of<br>a application for patent                            | any foreign app<br>or inventor's ce                                      | in accordance with Title 37, Code plication(s) for patent or inventor's retificate having a filing date before                                   |
| J.                                   | FOREIGN  | APPLICATIONS, IF ANY, O  | LAIMING PRIORIT  | TY UNDER 3:  | 5 USC § 119  |
|                                      | COUNTRY  | APPLICATION NUMBER   | DATE OF FILING<br>(day, month, year)   |  | DATE OF ISSUE<br>(day, month, year)  |
|                                      | JAPAN  | 11-076868  | 19/3/1999  |  |  |
|                                      | JAPAN  | 11-360187  | 20/12/1999   |  |  |
|                                      | JAPAN  | 2000-002344  | 11/1/2000  |  |  |
|                                      | JAPAN  | 2000-002370  | 11/1/2000  |  | ,  |
| belo<br>mar<br>defi                  | ow and, insofar as the subject<br>oner provided by the first par-<br>ned in Title 37, Code of Feder  | matter of each of the claims of t<br>agraph of Title 35, United States   | his application is not dis<br>Code, § 112, I acknowl<br>occurred between the f | sclosed in the predeted at the detection of the detection of the duty to | international application(s) listed rior United States application in the odisclose material information as e prior application and the national |
|                                      | U.S. APPLICATION NUMBI   | ER DATE OF FILING  | (day, month, year)   | STATUS (   | patented, pending, abandoned)  |
| <u></u>                              |  |  |  |  |  |
| I he                                 | reby claim the benefit under   | Title 35, United States Code § 1   | 19(e) of any United Stat   | es provisional a   | application(s) listed below:   |

I hereby appoint the following attorney(s) and/or patent agent(s) to prosecute this application and to transact all business in the Patent and Trademark Office connected herewith:

| Albrecht, John W.   | Reg. No. 40,481   | Lacy, Paul E.          | Reg. No. 38,946   |
|---|-------------------|------------------------|-------------------|
| Ansems, Gregory M.  | Reg. No. P-42,264 | Larson, James A.       | Reg. No. 40,443   |
| Batzli, Brian H.  | Reg. No. 32,960   | Lasky, Michael B.      | Reg. No. 29,555   |
| Beard, John L.  | Reg. No. 27,612   | Lindquist, Timothy A.  | Reg. No. 40,701   |
| Berman, Charles   | Reg. No. 29,249   | Lynch, David W.        | Reg. No. 36,204   |
| Black, Bruce E.   | Reg. No. P-41,622 | McDaniel, Karen D.     | Reg. No. 37,674   |
| Blasdell, Thomas L.   | Reg. No. 31,329   | McDonald, Daniel W.    | Reg. No. 32,044   |
| Bogucki, Raymond A.   | Reg. No. 17,426   | McIntyre, Iain A.      | Reg. No. 40,337   |
| Bruess, Steven C.   | Reg. No. 34,130   | Mueller, Douglas P.    | Reg. No. 30,300   |
| Byrne, Linda M.   | Reg. No. 32,404   | Nasiedlak, Tyler L.    | Reg. No. 40,099   |
| Canady, Karen S.  | Reg. No. 39,927   | Nelson, Albin J.       | Reg. No. 28,650   |
| Carlson, Alan G.  | Reg. No. 25,959   | Orler, Anthony J.      | Reg. No. 41,232   |
| Carter, Charles G.  | Reg. No. 35,093   | Pauly, Daniel M.       | Reg. No. 40,123   |
| Caspers, Philip P.  | Reg. No. 33,227   | Plunkett, Theodore     | Reg. No. 37,209   |
| Chiapetta, James R.   | Reg. No. 39,634   | Reich, John C.         | Reg. No. 37,703   |
| Clifford, John A.   | Reg. No. 30,247   | Reiland, Earl D.       | Reg. No. 25,767   |
| Daignault, Ronald A.  | Reg. No. 25,968   | Rittmaster, Ted R.     | Reg. No. 32,933   |
| Daley, Dennis R.  | Reg. No. 34,994   | Schmaltz, David G.     | Reg. No. 39,828   |
| Dalglish, Leslie E.   | Reg. No. 40,579   | Schuman, Mark D.       | Reg. No. 31,197   |
| Daulton, Julie R.   | Reg. No. 36,414   | Schumann, Michael D.   | Reg. No. 30,422   |
| DeVries Smith, Kate   | Reg. No. P-42,157 | Sebald, Gregory A.     | Reg. No. 33,280   |
| DiPietro, Mark J.   | Reg. No. 28,707   | Sharp, Janice A.       | Reg. No. 34,051   |
| Edell, Robert T.  | Reg. No. 20,187   | Skoog, Mark T.         | Reg. No. 40,178   |
| Epp Ryan, Sandra  | Reg. No. 39,667   | Smith, Jerome R.       | Reg. No. 35,684   |
|   | Reg. No. 32,612   | Soderberg, Richard     | Reg. NoP-43,352   |
| Farber, Michael B. Funk, Steven R. Glance, Robert J. Golla. Charles E.      | Reg. No. 37,830   | Sumner, John P.        | Reg. No. 29,114   |
| Glance, Robert J.   | Reg. No. 40,620   | Sumners, John S.       | Reg. No. 24,216   |
| Golla, Charles E.   | Reg. No. 26,896   | Tellekson, David K.    | Reg. No. 32,314   |
| Gorman, Alan G.   | Reg. No. 38,472   | Trembath, Jon R.       | Reg. No. 38,344   |
| Gould, John D.  | Reg. No. 18,223   | Underhill, Albert L.   | Reg. No. 27,403   |
| Gregson, Richard  | Reg. No. P-41,804 | Vandenburgh, J. Derek  | Reg. No. 32,179   |
| Gresens, John J.  | Reg. No. 33,112   | Victor, David W.       | Reg. No. 39,867   |
| Hamre, Curtis B.  | Reg. No. 29,165   | Welter, Paul A.        | Reg. No. 20,890   |
| Hillson, Randall A.   | Reg. No. 31,838   | Whipps, Brian          | Reg. No. P-43,261 |
| Johnston, Scott W.  | Reg. No. 39,721   | Williams, Douglas J.   | Reg. No. 27,054   |
| Hamre, Curtis B. Hillson, Randall A. Johnston, Scott W. Kastelic, Joseph M. | Reg. No. 37,160   | Witt McDonald, Jonelle | Reg. No. P-41,980 |
| Kettelberger, Denise  | Reg. No. 33,924   | Wood, Gregory B.       | Reg. No. 28,133   |
| Komanduri, Janaki   | Reg. No. 40,684   | Wood, William J.       | Reg. No. P-42,236 |
| Kowalchyk, Alan W.  | Reg. No. 31,535   | Xu, Min S.             | Reg. No. 39,536   |
| Kowalchyk, Katherine M.   | Reg. No. 36,848   | •                      | <b>-</b>          |
| Tag. 13   | <del>-</del>      |                        |                   |

I hereby authorize them to act and rely on instructions from and communicate directly with the person/assignee/attorney/firm/ organization who/which first sends/sent this case to them and by whom/which I hereby declare that I have consented after full disclosure to be represented unless/until I instruct Merchant, Gould, Smith, Edell, Welter & Schmidt to the contrary.

Please direct all correspondence in this case to Merchant, Gould, Smith, Edell, Welter & Schmidt at the address indicated below:

Merchant, Gould, Smith, Edell, Welter & Schmidt 3100 Norwest Center 90 South Seventh Street Minneapolis, MN 55402-4131 I hereby declare that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true; and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code and that such willful false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issued thereon.

|       | Full Name                  | Family Name  | First Given Name                  | !       | Second Given Name                          |
|-------|----------------------------|--|-----------------------------------|---------|--|
| 2     | Of Inventor                | YOSHIMURA  | Yasuyuki                          |         |  |
| 0     | Residence<br>& Citizenship | City C/O SAKURA COLOR PRODUCTS CORPORATION 1-6-20 MORINOMIYA CHUO CHUO-KU, OSAKA-SHI OSAKA-FU, JAPAN       | State or Foreign Country<br>JAPAN |         | Country of Citizenship JAPAN               |
| 1     | Post Office<br>Address     | Post Office Address SAME AS RESIDENCE  | City                              |         | State & Zip Code/Country<br>540-8508 JAPAN |
| Signa | ature of Inventor 20       | 11: Yasuzuki Yoshimur  | a                                 | Date: M | arch 8, 2000                               |
|       | Full Name                  | Family Name  | First Given Name                  |         | Second Given Name                          |
| 2     | Of Inventor                | MURATA   | Naoshi                            |         |  |
| 0     | Residence<br>& Citizenship | City C/O SAKURA COLOR PRODUCTS CORPORATION 1-6-20 MORINOMIYA CHUO CHUO-KU, OSAKA-SHI OSAKA-FU, JAPAN       | State or Foreign Country<br>JAPAN |         | Country of Citizenship<br>JAPAN            |
| 2     | Post Office<br>Address     | Post Office Address SAME AS RESIDENCE  | City                              |         | State & Zip Code/Country<br>540-8508 JAPAN |
| Signa | iture of Inventor 26       | 11: Mushi Murata.  |                                   | Date:   | March. 8. 2000.                            |
| 1     | Full Name                  | Family Name  | First Given Name                  |         | Second Given Name                          |
| 2     | Of Inventor                | YAMAMOTO   | Yuki                              | į       |  |
| • 1   | Residence<br>& Citizenship | City C/O SAKURA COLOR PRODUCTS CORPORATION 1-6-20 MORINOMIYA CHUO CHUO-KU, OSAKA-SHI OSAKA-FU, JAPAN       | State or Foreign Country<br>JAPAN |         | Country of Citizenship<br>JAPAN            |
| 3     | Post Office<br>Address     | Post Office Address SAME AS RESIDENCE  | City                              |         | State & Zip Code/Country<br>540-8508 JAPAN |
| Signa | ture of Inventor 20        | 11: Yuki Yamamoto  |                                   | Date:   | earch. 8.2000                              |
| Į.    | Full Name                  | Family Name  | First Given Name                  |         | Second Given Name                          |
| 2     | Of Inventor                | SAWA   | Tomohiro                          |         |  |
| 0 🗐   | Residence<br>& Citizenship | City C/O SAKURA COLOR PRODUCTS CORPORATION<br>1-6-20 MORINOMIYA CHUO<br>CHUO-KU, OSAKA-SHI OSAKA-FU, JAPAN | State or Foreign Country<br>JAPAN |         | Country of Citizenship<br>JAPAN            |
| 4     | Post Office<br>Address     | Post Office Address SAME AS RESIDENCE  | City                              |         | State & Zip Code/Country<br>540-8508 JAPAN |
| Signa | ture of Inventor 20        | 11: Tomohiro Sawa  |                                   | Date:   | rarch . F. 2000                            |
| 2     | Full Name<br>Of Inventor   | Family Name  | First Given Name                  |         | Second Given Name                          |
| 0     | Residence<br>& Citizenship | City   | State or Foreign Country          |         | Country of Citizenship                     |
| 5     | Post Office<br>Address     | Post Office Address  | City                              |         | State & Zip Code/Country                   |
| Signa | ture of Inventor 20        | 01:  |                                   | Date:   |  |

#### § 1.56 Duty to disclose information material to patentability.

- (a) A patent by its very nature is affected with a public interest. The public interest is best served, and the most effective patent examination occurs when, at the time an application is being examined, the Office is aware of and evaluates the teachings of all information material to patentability. Each individual associated with the filing and prosecution of a patent application has a duty of candor and good faith in dealing with the Office, which includes a duty to disclose to the Office all information known to that individual to be material to patentability as defined in this section. The duty to disclose information exists with respect to each pending claim until the claim is canceled or withdrawn from consideration, or the application becomes abandoned. Information material to the patentability of a claim that is canceled or withdrawn from consideration need not be submitted if the information is not material to the patentability of any claim remaining under consideration in the application. There is no duty to submit information which is not material to the patentability of any existing claim. The duty to disclose all information known to be material to patentability of any claim issued in a patent was cited by the Office or submitted to the Office in the manner prescribed by §§ 1.97(b)-(d) and 1.98. However, no patent will be granted on an application in connection with which fraud on the Office was practiced or attempted or the duty of disclosure was violated through bad faith or intentional misconduct. The Office encourages applicants to carefully examine:
  - (1) prior art cited in search reports of a foreign patent office in a counterpart application, and
- (2) the closest information over which individuals associated with the filing or prosecution of a patent application believe any pending claim patentably defines, to make sure that any material information contained therein is disclosed to the Office.
- (b) Under this section, information is material to patentability when it is not cumulative to information already of record or being made of record in the application, and
- (1) It establishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes, by itself or in combination with other information, a prima facie case of unpatentability of a claim; or the stablishes are stables as a stable of the stables are stables.
  - (ii) Asserting an argument of patentability.

A prima facie case of unpatentability is established when the information compels a conclusion that a claim is unpatentable under the preponderance of evidence, burden-of-proof standard, giving each term in the claim its broadest reasonable construction consistent with the specification, and before any consideration is given to evidence which may be submitted in an attempt to establish a contrary conclusion of patentability.

- (c) Individuals associated with the filing or prosecution of a patent application within the meaning of this section are:
  - (1) Each inventor named in the application:

4J

- (2) Each attorney or agent who prepares or prosecutes the application; and
- (3) Every other person who is substantively involved in the preparation or prosecution of the application and who is associated with the inventor, with the assignee or with anyone to whom there is an obligation to assign the application.
- (d) Individuals other than the attorney, agent or inventor may comply with this section by disclosing information to the attorney, agent, or inventor.

S/N unknown PATENT

## IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant:

Yoshimura et al.

Serial No.:

unknown

Filed:

concurrent herewith

Docket No.:

13041.3US01

Title:

AQUEOUS GLITTERING INK COMPOSITION

CERTIFICATE UNDER 37 CFR 1.10

'Express Mail' mailing label number: EL435542039US

Date of Deposit: 13 March 2000

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service 'Express Mail Post Office To Addressee' service under 37 CFR 1.10 on the date indicated above and is addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231.

Name: Linda McCormick

# CHANGE OF ADDRESS FOR APPLICANTS' ATTORNEY-OF-RECORD

Office of Initial Patent Examination's Customer Service Center Assistant Commissioner for Patents Washington, D.C. 20231

Dear Sir:

Applicants hereby inform the United States Patent and Trademark Office of their attorney-of-record's change of address to: P.O. Box 2903 Minneapolis, MN 55402-0903. Applicants request that all further communications be forwarded to this address.

Respectfully submitted,

MERCHANT & GOULD P.C.

P.O. Box 2903

Minneapolis, Minnesota 55402-0903

(612)332-5300

By

Dated: 13 March 2000

Douglas P. Mueller

Reg. No. 30,300

DPM/klj

20

25

#### 光輝性水性インキ組成物

# 発明の背景

5

#### 発明の分野

本発明は、筆記具、印刷インキ、塗料関連分野、化粧品関連分野などに好適に 使用することができる光輝性水性インキ組成物に関する。

# 10 従来技術の説明

従来、金色、銀色等の金属光沢色の筆跡を得るために光輝性顔料を用いた水性インキ組成物が提供されている。例えば、特開平7-118592号はアルミニウム粉顔料を用いた水性インキ組成物である。また特開平8-151547号はパール顔料を用いた水性インキ組成物である。また、特開平11-29734号は有機顔料をアルミニウム粉顔料に固着剤を用いて着色してなる水性メタリックインキである。

しかし、かかる従来のアルミニウム粉顔料、パール顔料等の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物の場合、強い光輝感と立体感を持つ筆跡乃至塗膜を得ることは困難であった。また、メタリック色を得るためにこれらの光輝性顔料を染料又は顔料等の色材で着色する方法が採られているが、着色する際、樹脂等を用いているため光輝性が失われる問題があった。

本発明の目的は、従来の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、より強い光輝感を持ち、さらには従来のインキ組成物にはなかった強い立体感を併せ持つ筆跡乃至塗膜を得ることができる光輝性水性インキ組成物を提供するところにある。

本発明の更なる目的は、従来の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、光輝性が失われることなく、強い光輝感を持つ、着色された筆跡乃至着色された塗膜を得ることができる光輝性水性インキ組成物を提供するところにある。

15

#### 発明の概要

上記目的を達成するため鋭意検討した結果、本発明は少なくともガラスフレーク顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含んでなる光輝性水性インキ組成物を採用した。また、本発明は、少なくとも金属被覆無機顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含んでなる光輝性水性インキ組成物を採用した。なお、本発明でいう「金属被覆無機顔料」とは、金属及び金属酸化物のうち少なくともいずれか1つの物質が被覆された無機顔料を総称するものとして定義される。

従って、上記のガラスフレーク顔料を含有した光輝性水性インキ組成物は、ガラスが持つ高い表面平滑性により、従来のアルミニウム粉顔料、パール顔料などの光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、より強い光輝感と立体感を有する筆跡乃至塗膜を得ることができる。

また、上記の金属被覆無機顔料を含有した光輝性水性インキ組成物も、無機顔料が金属蒸着等で着色されているため、従来の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、光輝性が失われることなく、より強い光輝感を持つ筆跡乃至塗膜を得ることができる。

#### 好ましい態様の説明

(ガラスフレーク顔料)

本発明で用いられるガラスフレーク顔料は、フレーク状ガラスが金属などで被 20 覆された構造からなり、光輝感と立体感を有する顔料として定義される。一例を 挙げれば、フレーク状ガラスが無電解メッキ法により金属で被覆されたガラスフレーク顔料を使用することができる。例えば、銀で被覆された東洋アルミニウム 社製の商品名「メタシャインREFSX-2015PS」、「メタシャインREFSX-2015PS」を例示す 25 ることができる。

また、フレーク状ガラスがスパッタリング法により金属で被覆されたガラスフレーク顔料も使用することができる。例えば、銀で被覆された東洋アルミニウム社製の商品名「クリスタルカラーGF2125」、「クリスタルカラーGF2125 -M」、「クリスタルカラーGF2140 -

10

15

M」がある。また、ニッケル・クロム・モリブデンで被覆された同社製の商品名「クリスタルカラーGF2525」「クリスタルカラーGF2525ーM」「クリスタルカラーGF2540」、「クリスタルカラーGF2540ーM」がある。また、真鍮で被覆された同社製の商品名「クリスタルカラーGF250」、銀合金で被覆された同社製の商品名「クリスタルカラーGF1345」、チタンで被覆された同社製の商品名「クリスタルカラーGF1345」がある。

本発明ではガラスフレーク顔料のメジアン径は $5.0\sim100\mu$ mが好適である。ガラスフレーク顔料のメジアン径が $5.0\mu$ m未満の場合は、フレーク粒子が小さすぎるため光輝性に劣り、また $100\mu$ mを超えるとボールペンインクとして使用する場合ペン先から出にくいため好ましくない。

本発明のガラスフレーク顔料は、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれていることが好ましい。上記ガラスフレーク顔料が、インキ組成物全量中0.01重量%未満の場合は光輝性及び立体感が充分でない。ガラスフレーク顔料がインキ組成物全量中40重量%を超えると、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下し、筆記性が低下する。ガラスフレーク顔料の最適配合量は、0.5~30重量%である。

# (金属被覆無機顔料)

本発明で用いる金属被覆無機顔料は、例えば金属蒸着等で金属及び又は金属酸

10 化物が被覆された無機顔料として構成されている。一例を挙げれば、酸化鉄(III)
が被覆されたアルミニウムを用いることができる。例えばBASF株式会社製の商品名「Paliocrom Gold L2000」、「Paliocrom Gold L2002」、「Paliocrom Gold L2020」、「Paliocrom Gold L2025」、「Paliocrom Orange L2800」がある。また、酸化鉄(III)が被覆された雲母を用いることができる。例えば

12 BASF株式会社製の商品名「Paliocrom Red Gold L2500」、「Paliocrom Red L4000」がある。また、アルミーマンガン被覆の雲母状酸化鉄(III)を用いることができる。例えばBASF株式会社製の商品名「Paliocrom Copper L3000」及び「Paliocrom Copper L3001」がある。また、還元二酸化チタンが被覆された雲母を用いることができる。例えばBASF株式会社製の商品名「Paliocrom Blue Silver

25

L6000」、「Paliocrom Blue Silver L6001」がある。また、二酸化チタンが被覆された雲母も用いることができる。

上記の金属被覆無機顔料のメジアン径も、ガラスフレーク顔料と同様に、 $5.0\sim100\,\mu\mathrm{m}$ が好適である。メジアン径が $5.0\,\mu\mathrm{m}$ 未満の場合は、上記の無機顔料粒子が小さすぎるため光輝性に劣り、また $100\,\mu\mathrm{m}$ を超えるとボールペンインクとして使用する場合ペン先から出にくいため好ましくない。

金属被覆無機顔料の配合量も、ガラスフレーク顔料と同様に、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれていることが好ましい。上記の無機顔料がインキ組成物全量中0.01重量%未満の場合は光輝性が充分でない。上記の無機顔料がインキ組成物全量中40重量%を超えると、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下する。上記の無機顔料の最適配合量は0.5~30重量%である。

# (水溶性有機溶剤)

水溶性有機溶剤は、ペン先での乾燥防止とインキの凍結防止を図ることができるものを用いることが好ましい。例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール等のグリコール類、グリセリン等の多価アルコール類、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノプロピルエーテル等のグリコールエノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノプロピルエーテル等のグリコールエーテル類を例示することができる。これらの有機溶剤は1種又は2種以上を混合して用いることができる。

水溶性有機溶剤は、インキ組成物全量中1.00~40重量%含まれていることが好ましい。上記水溶性有機溶剤がインキ組成物全量中1.00重量%未満の場合はペン先が乾燥しやすく、またインキが凍結しやすくなる。水溶性有機溶剤がインキ組成物全量中40重量%を超えると、前記水溶性樹脂の溶解性に影響を与えると共に、筆跡乃至塗膜が乾燥し難い。水溶性有機溶剤の最適配合量は、水溶性有機溶剤の種類によってやや異なるが、5.00~20重量%である。

#### (着色剤)

15

20

25

本発明では着色剤を用いることができる。着色剤を用いることにより、インキの色を種々の色に調整することができる。着色剤としては、前記ガラスフレーク 顔料や前記金属被覆無機顔料と反応せず、また、このようなガラスフレーク顔料 や金属被覆無機顔料の発色に影響を与えないものを用いることが重要である。更 に着色剤としては、溶解性及び分散性がよいものが好ましい。

具体的には、酸性染料、直接染料、塩基性染料などの水溶性染料のほか、カーボンブラック、酸化チタンなどの無機顔料、銅フタロシアニン系顔料、スレン系顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アンスラキノン系顔料、ジオキサン系顔料、インジゴ系顔料、チオインジゴ系顔料、ペリノン系顔料、ペリレン系顔料、インドレノン系顔料、アゾメチン系顔料などの有機顔料のほか、蛍光顔料、着色樹脂エマルジョンなどが挙げられる。また、これらを顔料分散体として用いることもできる。また、本発明で顔料は1種又は2種以上を混合して使用することができる。また、本発明のガラスフレーク顔料又は金属被覆無機顔料と、アルミニウム粉顔料、パール顔料等の光輝性顔料と混合して用いることができる。また、隠蔽性のある酸化チタン、アルキレンビスメラミン誘導体、球状・偏平状等の各種形状のプラスチックビグメント(合成樹脂粒子顔料)など、各種の無機又は有機白色顔料などの隠蔽性顔料を単独又は混合して用いることもできる。また、金属被覆無機顔料をガラスフレーク顔料とともに用いることもできる。

本発明の水性インキ組成物では、着色剤は必ずしも含まれていなくても差し支えない。着色剤は含まれていないがガラスフレーク顔料又は金属被覆無機顔料が含まれている水性インキ組成物でも、強い光輝感と強い立体感を筆跡又は塗膜に与えることができる。また、着色剤は含まれていないが金属被覆無機顔料が含まれている水性インキ組成物でも、強い光輝感を筆跡又は塗膜に与えることができる。しかし、着色剤が含まれている上記各水性インキ組成物では、着色剤の色相等によってその色相等に応じた強い輝きを筆跡又は塗膜に与えることができる点できわめて好ましい。

なお、着色剤は、インキ組成物全量中0.01~30重量%含まれていることが好ましい。上記着色剤がインキ組成物全量中0.01重量%未満の場合は当該着色剤の着色を視認し難い。着色剤がインキ組成物全量中30重量%を超えると

、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下する。着色剤の最適配合量は 、着色剤の種類によってやや異なるが、 0. 0 5~ 2 0 重量%である。

## (水溶性樹脂)

- 5 水溶性樹脂としては、インキの粘度調整をするとともに、ガラスフレーク顔料 或いは金属被覆無機顔料の分散及び沈降防止を図ることが出来る水溶性増粘樹脂 を用いることが好ましい。一例を挙げれば、微生物産系多糖類及びその誘導体が 用いられる。例えば、プルラン、ザンサンガム、ウェランガム、ラムザンガム、サクシノグルカン、デキストラン等を例示することができる。また、水溶性植物 3 系多糖類およびその誘導体が用いられる。例えば、トラガンシガム、グァーガム、タラガム、ローカストビーンガム、ガティガム、アラビノガラクタンガム、アラビアガム、クイスシードガム、ベクチン、デンプン、サイリュームシードガム、ベクチン、カラギーナン、アルギン酸、寒天等を例示することができる。また、水溶性動物系多糖類およびその誘導体が用いられる。例えば、ゼラチン、カゼ
- 本発明では上述した水溶性樹脂の中でも特に微生物産系多糖類及びその誘導体を好適に用いることができる。また、上述した水溶性樹脂は1種又は2種以上を 20 混合して用いることができる。

イン、アルブミンを例示することができる。また、増粘樹脂として、N-ビニル アセトアミド樹脂、架橋されたN-ビニルアセトアミド樹脂等のN-ビニルアセ

水溶性樹脂(水溶性増粘樹脂)は、インキ組成物全量中0.01~40重量% 含まれていることが好ましい。上記水溶性樹脂がインキ組成物全量中0.01重量%未満の場合はガラスフレーク顔料或いは金属被覆無機顔料の沈降防止効果が充分でない。水溶性樹脂がインキ組成物全量中40重量%を超えると、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下する。水溶性樹脂の最適配合量は、水溶性樹脂の種類によってやや異なるが、0.05~20重量%である。

## (合成樹脂エマルジョン)

トアミド系樹脂を用いることができる。

このように、本発明者は、金色、銀色等の金属光沢色の筆跡を得るために、水

20

25

溶性増粘樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含むインキ組成物に、ガラスフレーク顔料を用いることが好適であることを見出した。このガラスフレーク顔料を用いると、アルミニウム粉顔料やパール顔料に比べて、筆跡乃至塗膜により強い光輝感および立体感を付与することができる。

5 しかしながら、水溶性増粘樹脂が含まれる光輝性水性インキ組成物では、この水溶性増粘樹脂によりガラスフレーク顔料の定着性をある程度高めることは可能であるが、ガラスフレーク顔料はその形状が大きいため、水溶性増粘樹脂ではガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に強く定着させることが困難であることを見出した。従って、ガラスフレーク顔料を含む水性インキ組成物では、筆記乃至塗布後、摩擦などによりガラスフレーク顔料が剥がれやすく、強い光輝感と立体感を筆跡乃至塗膜に持続的に与えることが困難であり、光輝感と立体感を有する筆跡乃至塗膜の耐久性が低い。

上記のことから、インキ特性や筆記適性を低下させることなく、しかもガラスフレーク顔料配合による強い光輝感と立体感の効果を阻害することなく、筆跡乃至塗膜に対するガラスフレーク顔料の定着性を向上さることができ、より強い光輝感と立体感を筆跡乃至塗膜に与え続けることができる光輝性水性インキ組成物を提供することは重要な課題である。

上記課題を達成するため鋭意検討した結果、必須成分としてガラスフレーク顔料、水溶性増粘樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含み、さらに上記ガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に定着させるバインダー成分を含有してなる光輝性水性インキ組成物であれば、上記の課題を解決できることを見出した。

一方、このようなガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に強く定着させるために、バインダー成分として水溶性合成樹脂を用いることが考えられる。しかし、ガラスフレーク顔料を強く定着させるために、水溶性合成樹脂の種類によってはその含有量を高くすると、増粘樹脂の溶解性、着色剤の分散性に悪影響をもたらす場合がある。また、インキの粘弾性が大きく低下し、筆記適性が低下する場合がある。また、たとえ筆跡乃至塗膜に対する定着性が発揮されても、ガラスフレーク顔料の強い光輝感と立体感が当該筆跡乃至塗膜において低下する水性インキ組成物であってはならない。

10

15

本発明者らは、さらに鋭意検討した結果、ガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に定着させるためのバインダー成分として合成樹脂エマルジョンを用いると、水溶性増粘樹脂の溶解性、着色剤の分散性、インキの粘弾性、及びインキの発色に悪影響を与えず、しかもガラスフレーク顔料配合による強い光輝感と立体感の効果を阻害することなく、筆跡乃至塗膜へのガラスフレーク顔料の定着性を高めることができることを見出し本発明を完成させた。

従って、ガラスフレーク顔料を含有する本発明の水性インキ組成物は、これを 用いて紙、金属、プラスチック、繊維製品等の基材上に筆記又は塗布した場合、 筆跡乃至塗膜に対してガラスフレーク顔料の定着性を高めることができ、耐久性 のある筆跡又は塗膜とすることが可能であり、当該筆跡乃至塗膜に強い光輝感お よび立体感を与え続けることができる。これは、合成樹脂エマルジョンの造膜性 が、大きなフレーク形状を持つガラスフレーク顔料に対して適しており、ガラス フレーク顔料配合による強い光輝感と立体感の効果を阻害することなく、筆跡乃 至塗膜に強く定着させることができるからである。

しかも、本発明のバインダー成分は、水溶性合成樹脂ではなく、合成樹脂エマルジョンであることから、同時に配合される水溶性増粘樹脂の溶解性、着色剤の分散性及びインキの粘弾性などの特性に悪影響を与えることが少ない。従って、本発明のインキ組成物は、インキの粘性、筆記適性、及び筆跡乃至塗膜の色に影響を与えることなく、ガラスフレーク顔料の定着性を向上することができる。

20 この様なことから、本発明のガラスフレーク顔料を含有した光輝性水性インキ組成物は、インキ特性や筆記適性などを低下させずに、かつガラスが持つ高い表面平滑性を阻害することなく、従来のアルミニウム粉顔料、パール顔料などの光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、より強い光輝感と立体感を筆跡乃至塗膜に与え続けることができる。

25 本発明の合成樹脂エマルジョンとしては、格別限定されるものではなく、水分散性の合成樹脂エマルジョンであれば用いることができる。しかし、インキ特性及び筆記適性を考慮すると、水溶性増粘樹脂の溶解性やインキの粘度、着色剤の分散性、およびインキの発色に影響を与えないものを用いることが重要である。また、ガラスフレーク顔料配合による強い光輝感と立体感の効果を阻害しないこ

10

15

20

25

とが重要である。

また、合成樹脂エマルジョンの最低造膜温度は20 ℃以下であることが好ましい。合成樹脂エマルジョンの最低造膜温度が20 ℃以下、特に0 ℃以下であると、常温(25 ℃程度)では勿論、寒冷地でも皮膜化でき、基材に対する筆跡乃至塗膜の定着性を高めることができる。

また、合成樹脂エマルジョンは、アニオン性又はノニオン性を有しているものを好適に用いることができる。アニオン性又はノニオン性を有する合成樹脂エマルジョンは、例えばアニオン性又はノニオン性のモノマーから合成樹脂をつくるか、又はアニオン性又はノニオン性の乳化剤を用いることによって得ることができる。合成樹脂エマルジョンがアニオン性又はノニオン性を有していると、インキ組成物の安定性を高めることができる。

また合成樹脂エマルジョンは、インキのpHが6以上において、着色剤の分散性や水溶性増粘樹脂の溶解性に影響を与えないものが好ましい。

このような見地から、合成樹脂エマルジョンとしては、例えば、アクリル系合成樹脂エマルジョン、スチレンーアクリル系合成樹脂エマルジョン、酢酸ビニル系合成樹脂エマルジョンを用いることができる。また、アクリル系合成樹脂エマルジョンとしては、例えば、アクリル酸エステル共重合体合成樹脂エマルジョンが好適である。スチレンーアクリル系合成樹脂エマルジョンとしては、例えば、スチレンーアクリル酸エステル共重合体合成樹脂エマルジョンが好適である。また、酢酸ビニル系合成樹脂エマルジョンには、例えば、酢酸ビニル合成樹脂エマルジョン、酢酸ビニルーアクリル酸エステル共重合体合成樹脂エマルジョンが好適に用いられる。合成樹脂エマルジョンはこれらの合成樹脂の1種又は2種以上を混合して用いることができる。

具体的には、アクリル系合成樹脂エマルジョンとしては、商品名「ニカゾール FX336」(日本カーバイド工業株式会社製、アニオン性、pH7.5、最低 造膜温度0°C)、商品名「モビニールDM772」(クラリアントポリマー株式 会社製、アニオン性、pH8.5、最低造膜温度 $12\sim14$ °C)、商品名「モビニール700」(クラリアントポリマー株式会社製、アニオン性、pH8.0、最低造膜温度5°C) などが挙げられる。また、酢酸ビニル系合成樹脂エマルジ

ョンとしては、商品名「ニカゾールTG134A」(日本カーバイド工業株式会社製、pH7.5、最低造膜温度0°C)、商品名「モビニール507」(クラリアントポリマー株式会社製、ノニオン性、pH6.5、最低造膜温度0°C) などが挙げられる。

5 合成樹脂エマルジョンの含有量は特に制限されないが、例えば、インキ組成物 全量に対して固形分で0.01~40重量%が好適範囲である。合成樹脂エマル ジョンの含有量がインキ組成物全量に対して固形分で0.01重量%未満である と、筆跡又は塗膜に対するガラスフレーク顔料の定着性が低下する。一方、合成 樹脂エマルジョンの含有量がインキ組成物全量に対して固形分で40重量%を越 10 えると、固形分が多くなり、ペン先での塗膜化などにより筆記適性が低下する。 また筆跡又は塗膜が白色化し易くなる。筆跡又は塗膜に対するガラスフレーク顔 料の定着性を一層すぐれたものとするには、合成樹脂エマルジョンの含有量を、 インキ組成物全量に対して固形分で少なくとも0.3重量%とすることするが最 適である。また、筆記適性を一層優れたものにするには、合成樹脂エマルジョン 15 の含有量を、インキ組成物全量に対して固形分で20重量%とすることが最適で ある。すなわち、合成樹脂エマルジョンの最適含有量は、0.3~20重量%で ある。

なお、ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合においても、水溶性増粘樹脂として、インキの粘度調整をするとともに、ガラスフレーク顔料の分散及び沈降防止を図ることが出来る樹脂を用いることが重要である。また、水溶性増粘樹脂は、筆跡乃至塗膜の皮膜形成機能を有しているものを用いることができる。一例を挙げれば、微生物産系多糖類及びその誘導体が用いられる。例えば、プルラン、ザンサンガム、ウェランガム、ラムザンガム、サクシノグルカン、デキストラン等を例示することができる。また、水溶性植物系多糖類およびその誘導体が用いられる。例えば、トラガンシガム、グァーガム、タラガム、ローカストビーンガム、ガティガム、アラビノガラクタンガム、アラビアガム、クイスシードガム、ベクチン、デンプン、サイリュームシードガム、ベクチン、カラギーナン、アルギン酸、寒天等を例示することができる。また、水溶性動物系多糖類およびその誘導体が用い

20

25

られる。例えば、ゼラチン、カゼイン、アルブミンを例示することができる。

また、水溶性増粘樹脂としては、水溶性樹脂(アクリル系水溶性樹脂、スチレンアクリル系水溶性樹脂、スチレンマレイン酸系水溶性樹脂など)の塩(ナトリウム塩、アンモニウム塩など)や、水分散型樹脂なども用いることができる。

5 ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを 含有するインキ組成物の場合も、上述した水溶性増粘樹脂の中でも特に微生物産 系多糖類及びその誘導体を好適に用いることができる。水溶性増粘樹脂は1種又 は2種以上を混合して用いることができる。

また、ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物では、水溶性増粘樹脂は、インキ組成物全量に対して0.01~40重量%含まれていることが好ましい。水溶性増粘樹脂がインキ組成物全量に対して0.01重量%未満の場合はガラスフレーク顔料が沈降し易い。水溶性増粘樹脂がインキ組成物全量に対して40重量%を超えると、合成樹脂エマルジョンを含有する水性インキ組成物では、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下して、筆記適性が低下する。水溶性増粘樹脂の最適配合量は、水溶性増粘樹脂の種類によってやや異なるが、0.05~20重量%である。

また、ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合でも、水溶性有機溶剤としては、ペン先での乾燥防止とインキの凍結防止を図ることができるものを用いることが好ましい。例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール

、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール等のグリコール類、グリセリン等の多価アルコール類、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノプロピルエーテル等のグリコールエーテル類を例示することができる。これらの有機溶剤は1種又は2種以上を混合して用いること

することができる。これらの有機溶剤は1種又は2種以上を混合して用いることができる。

水溶性有機溶剤としては、炭素数1乃至4の脂肪族1価アルコール類、グリセリン等の脂肪族多価アルコール類、プロピレングリコール等のグリコール類、プロピレングリコールモノメチルエーテル等のグリコールエーテル類が好適に用い

られる。

5

ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合でも、水溶性有機溶剤は、インキ組成物全量に対して1~40重量%含まれていることが好ましい。水溶性有機溶剤がインキ組成物全量に対して1重量%未満の場合はペン先が乾燥しやすく、またインキが凍結しやすくなる。水溶性有機溶剤がインキ組成物全量に対して40重量%を超えると、水溶性増粘樹脂の溶解性に影響を与えると共に、筆跡乃至塗膜が乾燥し難くなる。水溶性有機溶剤の最適配合量は、このインキ組成物の場合、水溶性有機溶剤の種類によってやや異なるが、5~30重量%である。

- また、ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合でも、着色剤を用いることができる。着色剤を用いることにより、インキの色を種々の色に調整することができる。着色剤としては、ガラスフレーク顔料と反応せず、また、このようなガラスフレーク顔料の発色に影響を与えないものを用いることが重要である。更に着色剤としては、
- 15 溶解性及び分散性がよいものが好ましい。

具体的には、着色剤としては、酸性染料、直接染料、塩基性染料などの水溶性染料 (トリフェニルメタン系、キサンテン系、アントラキノン系、金属錯体系、銅フタロシアニン系など)、フタロシアニン、キナクリドン、カーボンブラック、酸化チタンなどの有機顔料又は無機顔料、或いは蛍光顔料、樹脂エマルジョン、着色樹脂エマルジョンなどを使用することができる。また、顔料分散体として配合することもできる。着色剤は1種又は2種以上を混合して使用することができる。

ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合でも、着色剤は必ずしも含まれていなくても差し支えない。着色剤は含まれていないがガラスフレーク顔料が含まれている水性インキ組成物でも、強い光輝感と強い立体感を筆跡又は塗膜に与えることができる。しかし、着色剤が含まれている上記各水性インキ組成物では、着色剤の色相等によってその色相等に応じた強い輝きを筆跡又は塗膜に与えることができる点できわめて好ましい。

5

ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合では、着色剤は、インキ組成物全量に対して0.01~30重量%含まれていることが好ましい。着色剤がインキ組成物全量に対して0.01重量%未満の場合は当該着色剤の着色を視認し難くなる。着色剤がインキ組成物全量に対して30重量%を超えると、インキとしては粘度が上がりすぎ、流動性が低下する。また、光輝感が低下する。着色剤の最適配合量は、着色剤の種類によってやや異なるが、0.05~20重量%である。

# (その他の添加物)

10 なお、本発明のインキ組成物では、イオン交換水等の慣用の水を配合することができる。また、その他必要に応じて、ポリオキシエチレンアルカリ金属塩、ジカルボン酸アミド、リン酸エステル、Nーオレイルサルコシン塩等の潤滑剤、ベンゾトリアゾール、トリルトリアゾールジシクロヘキシルアンモニウムナイトレート等の防錆剤、ベンゾイソチアゾリン系、ペンタクロロフェノール系、クレゾール等の防腐防黴剤、各種界面活性剤などを添加することができる。

# (粘度範囲)

なお、本発明のインキ組成物の好適な粘度範囲は $1000\sim1000\,\mathrm{mPa}$  ・sである。本発明のインキ組成物はかかる粘度範囲に調整される。なお、この 粘度は $\mathrm{ELD}$ 型粘度計( $3^{\circ}$  R 14 コーン、回転数: $0.5\,\mathrm{rpm}$ 、 $20^{\circ}$ C) における測定値である。

# (用途)

本発明の光輝性水性インキ組成物は、筆記具分野、印刷関連分野、塗料関連分野、化粧品関連分野などにおいて用いられ、筆記具用光輝性水性インキ組成物(ボールペン用光輝性水性インキ組成物など)、印刷用光輝性水性インキ組成物、塗布具用光輝性水性インキ組成物(塗料用光輝性水性インキ組成物など)などとして各種用途で有用である。特に、ボールペン用光輝性水性インキ組成物として最適である。

# (製造方法)

本発明の光輝性水性インキ組成物は、格別限定されるものではないが、例えば水、水溶性有機溶剤、ガラスフレーク顔料、及び着色剤乃至顔料ベース等の各成分を混合攪拌し分散させた後、水溶性樹脂を投入し、これを濾過した後脱泡することによって得ることができる。特に、ガラスフレーク顔料とともに、バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有するインキ組成物の場合では、格別限定されるものではないが、例えば次の方法によって製造することが好ましい。まず、水及び水溶性有機溶剤、及び必要に応じてその他の添加剤を混合して攪拌し、これにガラスフレーク顔料を投入して撹拌した後、水溶性増粘樹脂を加えて攪拌する。次に、この混合液に必要に応じてpHの調整を行ってから着色剤を必要に応じて加えて攪拌する。続いて、合成樹脂エマルジョンを加えて混合する。

なお、かかる調製に際しては、従来公知の分散方法、脱泡方法、濾過方法など を採用することができる。

15

20

25

10

5

#### 実施例

表1に示す組成及び配合量(重量部)で、水、水溶性有機溶剤、ガラスフレーク顔料、及び着色剤乃至顔料ベース等の各成分を混合攪拌し分散させた後、水溶性樹脂を投入し、これを濾過した後脱泡し、実施例の光輝性水性インキ組成物を得た。また比較のため、水、水溶性有機溶剤、光輝性顔料等の各成分を混合攪拌し分散させた後、水溶性樹脂を投入し、これを濾過した後脱泡し、比較例の光輝性水性インキ組成物を得た。いずれも、分散方法、脱泡方法、濾過等は従来公知の方法を用いた。

また、同じく、表 2 に示す組成及び配合量(重量部)で、水、水溶性有機溶剤、光輝性顔料等の各成分を混合攪拌し分散させた後、水溶性樹脂を投入し、これを濾過した後脱泡し、実施例及び比較例の各光輝性水性インキ組成物を得た。いずれも、分散方法、脱泡方法、濾過等は従来公知の方法を用いた。

また、前記と同様にして、表3~表8に示す組成及び配合量(重量部)で、ガラスフレーク顔料又は光輝性顔料、水、水溶性有機溶剤等の各成分を混合撹拌し

分散させた後、水溶性樹脂を投入し、これを濾過後脱泡し、実施例及び比較例の 各光輝性水性インキ組成物を得た。いずれも、分散方法、脱泡方法、濾過等は従 来公知の方法を用いた。

なお、表6に係る実施例では、着色剤として蛍光顔料を含む着色エマルジョン 5 を用いた。

|          |                     |           |      | 1     | _    |      |      |      |      |
|----------|---------------------|-----------|------|-------|------|------|------|------|------|
| Γ        |                     |           |      | 実     | 施修   |      |      | 比較   | 例    |
|          |                     | ľ         | 1    | ${2}$ | 3    | 4    | 5    | 1    | 2    |
| ガラ       | スフレ                 | 1         | 7.0  | _     | 7.0  | _    |      | _    |      |
| 一ク       |                     | <u>Ø</u>  |      | 5.0   | _    | 5.0  | 10.0 |      |      |
|          |                     | 1         | _    | _     | _    |      |      | 5.0  |      |
| 光輝       | 性顔料                 | 2         |      | _     | _    | _    |      | _    | 10.0 |
| -        | I I I I I I I I I I | 1         | 0.3  | 0.3   | _    |      |      | 0.3  |      |
| 水溶       | 性樹脂                 | 2         | _    | _     | 0.3  | 0.3  | 0.2  |      | 0.3  |
| <u> </u> |                     | 1         | 1.0  | 1.0   | -    |      |      |      |      |
| 着色       | 剤                   | 2         | _    |       | _    |      | 2.0  |      |      |
| 顔料       | ベース                 | 1         | _    |       | 20.0 | 20.0 |      |      |      |
|          |                     | 1         | 5.0  | 5.0   | 5.0  | 5.0  |      | 5.0  | 5.0  |
|          | 性有機                 | 2         | _    | _     | _    |      | 7.0  |      |      |
| 溶剤       |                     | 3         | _    | _     |      | _    | 14.0 |      | _    |
| 防腐       | 防黴剤                 | 1         | 0.1  | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 防錆       |                     |           | 0.1  | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 潤滑       |                     |           | 1.2  | 1.2   | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  |
| 水        | 714                 |           | 85.3 | 87.3  | 66.3 | 68.3 | 65.4 | 88.3 | 83.3 |
| 評        | 光輝                  | 感         | 0    | 0     | 0    | 0    | 0    | ×    | ×    |
| 価        | 立体                  | <br>感     | 0    | 0     | 0    | 0    | 0    | ×    | ×    |
| 試験       | 筆記                  | <u></u> 性 | 0    | 0     | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |

|                 |           |       |      | 20   |      |      |      |      |
|-----------------|-----------|-------|------|------|------|------|------|------|
|                 |           | 1     |      | 実    | 施修   | il   |      | 比較例  |
|                 |           | ł     | 6    | 7    | 8    | 9    | 1 0  | 3    |
|                 |           | 3     | 7.0  | _    | 7.0  | _    | 7.0  |      |
| <br>  光輝性       | 上 安 县 米 才 | 4     |      | 5.0  |      | 5.0  | _    |      |
| / <i>UN</i> +1_ | LBRA-1    | 1     | _    |      | _    |      | _    | 7.0  |
|                 |           | 1     | 0.3  | 0.3  | _    | _    |      |      |
| 水溶性             | 生樹脂       | 2     | _    | _    | 0.3  | 0.3  | 0.2  | 0.3  |
| ~~~             |           | 3     |      | _    | _    | _    |      | 3.0  |
|                 |           | 1     | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  |      | 5.0  |
|                 | 生有機       | 2     |      | _    |      |      | 7.0  |      |
| 溶剤              |           | 3     | _    |      |      |      | 14.0 |      |
| 着色              | <br>웨     | 2     | _    | _    |      |      | 2.0  |      |
|                 | ベース       | 2     |      | _    |      |      |      | 40.0 |
|                 | 仿黴剤       | 1     | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 防錆              |           |       | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 潤滑              |           |       | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  |
| 水               |           |       | 86.3 | 88.3 | 86.3 | 88.3 | 68.4 | 43.3 |
| 評価              | 光輝        | 感     | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | ×    |
| 試験              | 筆記        | <br>性 | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |

|    |     | • |      |      |      |      |      |
|----|-----|---|------|------|------|------|------|
|    |     |   |      | 美    | 施施   | 剂    |      |
|    |     | ŀ | 1 1  | 1 2  | 1 3  | 1 4  | 1 5  |
| ガラ | スフレ | 3 | 7.0  | _    | 7.0  | _    |      |
| ーク |     | 4 | _    | 5.0  |      | 5.0  | 10.0 |
|    |     | 1 | 0.3  | 0.3  |      |      |      |
| 水溶 | 性樹脂 | 2 | _    | _    | 0.3  | 0.3  | 0.2  |
|    |     | 1 | 1.0  | 1.0  | _    |      |      |
| 着色 | 削   | 2 | _    |      | _    |      | 2.0  |
| 顔料 | ベース | 1 | _    | _    | 20.0 | 20.0 |      |
|    |     | 1 | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  |      |
|    | 性有機 | 2 | _    | _    | _    |      | 7.0  |
| 溶剤 |     | 3 |      | _    | _    |      | 14.0 |
| 防腐 | 防黴剤 | 1 | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 防錆 |     |   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 潤滑 |     |   | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2  |
| 水  | 714 |   | 85.3 | 87.3 | 66.3 | 68.3 | 65.4 |
| 評  | 光輝  | 感 | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |
| 価  | 立体  | 感 | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |
| 試験 | 筆記  | 性 | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |

|    |       |       |       | 20   |      |      |        |      |
|----|-------|-------|-------|------|------|------|--------|------|
|    |       |       |       | 実 拼  | 6. 例 |      | 比較     | 校例   |
|    |       |       | 1 6   | 17   | 18   | 1 9  | 4      | 5    |
| ガラ | スフレ   | 1     | 0.01  | _    |      | 40.0 | 0.005  | 50.0 |
| ロク |       | 4     | -     | 0.5  | 30.0 | _    | _      |      |
|    |       | 1     | 0.3   | 0.3  | _    | _    | 0.3    | 0.3  |
| 水溶 | 性樹脂   | 2     |       |      | 0.3  | 0.3  |        |      |
| 着色 | <br>割 | 1     | 1.0   | 1.0  | 1.0  | 2.0  |        | 2.0  |
|    | 性有機   | 1     | 5.0   | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0    | 5.0  |
|    | 防黴剤   | 1     | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1    | 0.1  |
| 防錆 |       |       | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1    | 0.1  |
| 潤滑 |       |       | 1.2   | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2    | 1.2  |
| 水  | H3    |       | 92.29 | 91.8 | 92.3 | 51.3 | 93.295 | 41.3 |
| 評  | 光輝    | <br>感 | 0     | 0    | 0    | 0    | ×      | 0    |
| 価  | 立体    |       | 0     | 0    | 0    | 0    | ×      | 0    |
| 試験 | 筆記    |       | 0     | 0    | 0    | 0    | 0      | ×    |

|       |         |   |       | 実が   | 6 例  |      | 比較     | 例    |
|-------|---------|---|-------|------|------|------|--------|------|
|       |         |   | 20    | 2 1  | 2 2  | 2 3  | 6      | 7    |
|       |         | 3 | 0.01  |      | _    | 40.0 | 0.005  | 50.0 |
| 光輝性   | 主顔料     | 4 |       | 0.5  | 30.0 | _    |        |      |
|       | . IAIM  | 1 | 0.3   | 0.3  |      |      | 0.3    | 0.3  |
| 水溶性   | 主樹脂     | 2 | _     |      | 0.3  | 0.3  |        |      |
| 水溶物溶剂 | 生有機     | 1 | 5.0   | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0    | 5.0  |
|       | <br>方黴剤 | 1 | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1    | 0.1  |
| 防錆剤   |         |   | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1    | 0.1  |
| 潤滑    |         |   | 1.2   | 1.2  | 1.2  | 1.2  | 1.2    | 1.2  |
| 水     |         |   | 93.29 | 92.8 | 63.3 | 53.3 | 93.295 | 43.3 |
| 評価    | 光輝      | 感 | 0     | 0    | 0    | 0    | ×      | 0    |
| 試験    | 筆記      | 性 | 0     | 0    | 0    | 0    | 0      | ×    |

|  |              |   |      |      | <del></del> | the t | 희    |      |      |
|--|--------------|---|------|------|-------------|-------|------|------|------|
|  |              |   |      |      | 美           |       | 列    | 0.0  | 0.0  |
|  |              |   | 2 4  | 2 5  | 26          | 2 7   | 28   | 29   | 3 0  |
|  |              | 1 | 5.0  | 5.0  |             | _     |      | _    |      |
| ガラ                                     | スフレ          | 2 | _    | _    | 5.0         | _     |      |      |      |
| ーク                                     | 顔料           | 3 | _    | _    | _           | 5.0   |      | _    |      |
|  |              | 4 | _    | _    |             |       | 5.0  |      |      |
| \[\]\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\ | いたみまかり       | 3 | _    | _    | _           |       |      | 5.0  | _    |
| 光輝                                     | 性顔料          | 4 | _    |      | _           | _     |      |      | 5.0  |
| 1. 345                                 | .111.451111- | 1 | 0.3  | 0.3  |             | _     | _    | 0.3  |      |
| 水浴                                     | 性樹脂          | 2 | _    | _    | 0.3         | 0.3   | 0.3  | _    | 0.3  |
| ->4: As                                | -trai        | ⑤ | 1.0  | _    | 1.0         | 1.0   |      | 1.0  | 1.0  |
| 着色                                     | 削            | 6 | _    | 1.0  |             | -     | 1.0  | _    |      |
| 水溶溶剂                                   | 性有機          | 1 | 5.0  | 5.0  | 5.0         | 5.0   | 5.0  | 5.0  | 5.0  |
|  | 防黴剤          | 1 | 0.1  | 0.1  | 0.1         | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 防錆                                     |              |   | 0.1  | 0.1  | 0.1         | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 潤滑                                     |              |   | 1.2  | 1.2  | 1.2         | 1.2   | 1.2  | 1.2  | 1.2  |
| 水                                      |              |   | 87.3 | 87.3 | 87.3        | 87.3  | 87.3 | 87.3 | 87.3 |
| 評                                      | 光輝           | 感 | 0    | 0    | 0           | 0     | 0    | 0    | 0    |
| 価試                                     | 立体           | 感 | 0    | 0    | 0           | 0     | 0    | _    | _    |
| 験                                      | 筆記/          | 性 | 0    | 0    | 0           | 0     | 0    | 0    | 0    |

|     |           |     |      | 実 旅  | 例    |      |
|-----|-----------|-----|------|------|------|------|
| İ   |           | ļ   | 3 1  | 3 2  | 3 3  | 3 4  |
| ガラ  | スフレ       | 1   | 7.0  |      | 7.0  | _    |
| ーク) | 顔料        | 2   | _    | 5.0  | _    | 5.0  |
|     |           | 1   | _    | _    | _    |      |
| 光輝  | 性顔料       | 2   | _    |      | _    |      |
|     |           | 4   | 0.3  |      |      | 0.2  |
| 水溶  | 性樹脂       | (5) |      | 0.3  |      | 0.1  |
|     |           | 6   |      |      | 0.3  |      |
| 主力  | 如         | 1   | 1.0  | 1.0  |      | _    |
| 着色  | 利         | 2   | _    |      |      |      |
| 顔料  | ベース       | 1   |      |      | 20.0 | 20.0 |
| 1   | 1 tt 1616 | 1   | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  |
|     | 性有機       | 2   |      |      | _    |      |
| 溶剤  |           | 3   | _    | _    |      |      |
| 防腐  | 防黴剤       | 1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 防錆  | 剤         |     | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 潤滑  | <br>剤     |     | 1.2  | 1.2  | 1.2_ | 1.2  |
| 水   |           |     | 85.3 | 87.3 | 66.3 | 68.3 |
| 評   | 光輝        | 感   | 0    | 0    | 0    | 0    |
| 価試  | 立体        | 感   | 0    | 0    | 0    | 0    |
| 験   | 筆記        | 性   | 0    | 0    | 0    | 0    |

|              |                       |                                    | 1   | _  |  |                               |      |
|--------------|-----------------------|------------------------------------|---|--|--|-------------------------------|------|
|              | 1                     |                                    |   | 実 施  | 例  |                               |      |
|              | Ì                     | 3 5                                | 3 6   | 3 7  | 3 8  | 3 9                           | 4 0  |
| スフレ          | 1                     | 5.0                                | 5.0   | 5.0  | _  | _                             |      |
| 顔料           |                       |                                    | _   | _  | 5.0  | 5.0                           | 5.0  |
| tit. detalol | 1                     | 5.0                                | _   |  | 5.0  |                               |      |
| 性顏料          | 2                     |                                    | 5.0   |  |  | 5.0                           |      |
| 性樹脂          |                       | 0.3                                | 0.3   | 0.3  | 0.3  | 0.3                           | 0.3  |
| ベース          | 3                     | _                                  | _   | 20.0   |  |                               | 20.0 |
| 性有機          | 1                     | 5.0                                | 5.0   | 5.0  | 5.0  | 5.0                           | 5.0  |
|              | 1                     | 0.1                                | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1                           | 0.1  |
|              |                       | 0.1                                | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1                           | 0.1  |
|              |                       | 1.2                                | 1.2   | 1.2  | 1.2  | 1.2_                          | 1.2  |
|              |                       | 83.3                               | 83.3  | 68.3   | 83.3   | 83.3                          | 68.3 |
| 光輝原          | <u> </u>              | 0                                  | 0   | 0  | 0  | 0                             | 0    |
| 立体原          | ———<br>Š              | 0                                  | 0   | 0  | 0  | 0                             | 0    |
| 筆記           | 生                     | 0                                  | 0   | 0  | 0  | 0                             | 0    |
|              | 性顔料性樹脂ス性有機防剤剤 光輝原 立体原 | 顔料 ② 性顔料 ② 性樹脂 ① べース ③ 性有機 ① 防黴剤 ① | スフレ     ①     5.0       顔料     ②     -       性顔料     ①     5.0       性樹脂     ①     0.3       ベース     ③     -       性有機     ①     5.0       防黴剤     ①     0.1       剤     1.2       83.3       光輝感     ○       立体感     ○ | スフレ ① 5.0 5.0<br>顔料 ②<br>性顔料 ① 5.0 -<br>② - 5.0<br>性樹脂 ① 0.3 0.3<br>ベース ③<br>性有機 ① 5.0 5.0<br>防黴剤 ① 0.1 0.1<br>剤 0.1 0.1<br>剤 1.2 1.2<br>83.3 83.3<br>光輝感 ○ ○<br>立体感 ○ ○ | 実施 35 36 37  スフレ ① 5.0 5.0 5.0  顔料 ② 性顔料 ② - 5.0 - 性樹脂 ① 0.3 0.3 0.3 ベース ③ - 20.0  性有機 ① 5.0 5.0 5.0  防黴剤 ① 0.1 0.1 0.1 剤 0.1 0.1 0.1 剤 1.2 1.2 1.2  83.3 83.3 68.3  光輝感 ○ ○ ○ 立体感 ○ ○ | 実施例   35   36   37   38   スフレ | 実施例  |

# (実施例41)

表9に示す組成及び配合量(重量部)で、次の合成樹脂エマルジョン配合に係る製造方法により実施例41に係る光輝性水性インキ組成物を得た。すなわち、

5 まず、水及び水溶性有機溶剤、及び必要に応じてその他の添加剤を混合して攪拌し、これにガラスフレーク顔料を投入して撹拌した後、水溶性増粘樹脂を加えて攪拌する。次に、この混合液に必要に応じてpHの調整を行ってから着色剤を必要に応じて加えて攪拌する。続いて、合成樹脂エマルジョンを加えて混合する。

なお、かかる調製に際しては、従来公知の分散方法、脱泡方法、濾過方法などを採用した。また、前記製造方法におけるpH調整はカセイソーダによってpH8.5に調整した。

(実施例42~49)

表9及び表10に示す組成及び配合量(重量部)であること以外は、実施例4 1と同様にして実施例42~49に係る光輝性水性インキ組成物を得た。

15 (比較例8~14)

表9及び表10に示す組成及び配合量(重量部)であること以外は、実施例4 1と同様にして比較例8~14に係る光輝性水性インキ組成物を得た。

なお、実施例42~49および比較例8~14では、いずれも、分散方法、脱 泡方法、濾過等は従来公知の方法を用いた。

10

(重量部)

|                             |            |      |      | 実施   | (A)  |      |      | 比較例  |      |
|-----------------------------|------------|------|------|------|------|------|------|------|------|
|                             |            | 4.1  | 4.2  | 4.3  | 4 4  | 4.5  | ∞    | တ    | 10   |
| ガラスフレーク顔料                   | <b>(</b>   | 5.0  | 2.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  | 5.0  |
| 加掛木財本外个                     | <b>(</b>   | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| <b>ハハ付   エ≁目 4日 129 71日</b> | <u>(</u>   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
|                             | $\odot$    | 7.5  |      |      |      |      |      |      |      |
|                             | <u>(3)</u> |      | 7.5  |      |      |      |      |      |      |
| バインダー成分                     | ඟ          |      |      | 7.5  |      |      |      |      |      |
| (国形分)                       | <b>(4)</b> |      |      |      | 7.5  |      |      |      |      |
|                             | <b>©</b>   |      |      |      |      | 7.5  |      |      |      |
|                             | 0          |      |      |      |      |      |      | 2.0  | 15.0 |
| <b>卡茨斯什勒该</b>               | Θ          | 7.0  | 7.0  | 7.0  | 7.0  | 7.0  | 7.0  | 7.0  | 7.0  |
| 小伯工有做付刑                     | <b>(4)</b> | 15.0 | 15.0 | 15.0 | 15.0 | 15.0 | 15.0 | 15.0 | 15.0 |
| 顔料ベース                       | Θ          | 2.0  | 2.0  | 2.0  | 2.0  | 2.0  | 2.0  | 2.0  | 2.0  |
| 防腐防黴剤                       | Θ          | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0,1  | 0.1  |
| 潤滑剤                         |            | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  |
| 水                           |            | 63.0 | 63.0 | 63.0 | 63.0 | 63.0 | 70.5 | 68.5 | 55.5 |
| 定着性                         |            | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | ×    | ×    | 0    |
| 筆記適性                        |            | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | ×    |
| 光輝感                         |            | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |
| 立体感                         |            | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    | 0    |

注記)バインダー成分は、固形分の含有量(重量部)で記載している。

| (無言型)  |                |      |              |        |        |        | l     | Ī     |      |
|--|----------------|------|--------------|--------|--------|--------|-------|-------|------|
| (田富市)  | H              |      | <del>币</del> | /bi    |        |        | 开零    | [2]   |      |
|  |                | ļ    |              | 6.4    |        | -      | 1.9   | 1.3   | 14   |
|  | _              | 4 6  | 4.7          | 4<br>8 | 4 y    | 7 7    | 7 7   | ,     | 3    |
|  | (              |      | щ            | 30     | 5.0    | 5.0    | 5.0   | 0.01  | ng   |
| ガラスフレーク顔料  | <del>3</del> ) | 0.0  | 0.0          | 3      | 60     | 0.0    | 0.2   | 0.2   | 0.2  |
| 3.2  | <b>⊕</b>       | 0.2  | 0.2          | 0.7    | 7.0    |        | 10    | 10    | 0.1  |
| 水溶性増粘極脂  | Œ              | 0.1  | 0.1          | 0.1    | 0.1    | 0.1    | 0.1   | 1.0   |      |
|  | )              |      |              |        | 0.01   | 0.005  | 45    |       |      |
| バインダー成分  | Ð              | 40   |              |        | 1000   |        |       | 7.5   | 7.5  |
| (少年里)  | 0              |      | 7.5          | G.7    |        |        |       | t     | 7.0  |
| (アクバロ)   | 0 6            | C    | 0            | 7.0    | 7.0    | 7.0    | 7.0   | 7.0   | 0.7  |
| · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·  | ∂              | 0.7  | 0:           | 2: 1   |        | 0 11   | 150   | 15.0  | 15.0 |
| 水溶性有機溶剤  | $\in$          | 15.0 | 15.0         | 15.0   | 15.0   | 0.61   | 10.0  | 200   |      |
|  | Ð              | 10.0 | 200          | C      | 0.6    | 9.0    | 2.0   | 2.0   | 7.0  |
| 語がベース  | $\Theta$       | 2.0  | 7.0          | 0.7    | 0      | î      | -     | 0.1   | 0.1  |
| The same of the sa | 6              | 1    | 0            |        | 0.1    | 0.1    | U, I  | 7:5   |      |
| 防腐防黴剤  | 3              | 0.1  | 1,0          | 0.1    | 0.1    | 0.1    | 0.1   | 0.1   | 0.1  |
| 温滑剤  |                | 0.1  | U.I          | T'.0   | 7.0    | 70 495 | 95.5  | 62.79 | 18.0 |
| 1  |                | 30.5 | 67.5         | 38.0   | /U.43  | 10.400 | 20:01 |       |      |
| $\sqrt{V}$   | 1              |      |              | C      | C      | ×      | 0     | 0     | Э    |
| 定着性  |                | Э    |              |        |        |        | ×     | С     | ×    |
| 体記し海が  |                | C    | 0            | О<br>_ | )<br>) |        |       | ,     |      |
| 工(面)口  |                |      |              | C      | С      | 0      | ×     | ×     | Э    |
| 光輝感  |                | Э    |              |        |        |        | ×     | ×     | 0    |
| 11/1   |                | C    | C            | )<br>_ | _<br>Э |        | ·     |       |      |

 立体感
 〇
 〇
 〇
 〇

 注記) バインダー成分は、固形分の含有量(重量部)で記載している。

表1~表10中、各原料組成は下記の通りである。 (ガラスフレーク顔料)

- ①商品名「クリスタルカラーG F 2 5 2 5 M」、東洋アルミニウム株式会 社製、メジアン径約 2 5  $\mu$  m
- 5 ②商品名「クリスタルカラーGF2540」、東洋アルミニウム株式会社製 、メジアン径約40μm
  - ③商品名「メタシャインREFSX-2025PS」、東洋アルミニウム株式会社製、メジアン径約25  $\mu$ m
- ④商品名「メタシャインREFSX-2040PS」、東洋アルミニウム株10 式会社製、メジアン径約40μm

# (光輝性顔料)

- ①アルミニウム粉顔料:商品名「WXM0630」、東洋アルミニウム株式会社製、平均粒径約8μm
- ②パール顔料:商品名「Iriodin302」、メルクジャパン株式会社製、平均粒15 子径約5~20μm
  - ③金属被覆無機顔料 (黄色): 商品名「Paliocrom Gold L2002」、BASF 株式会社製、メジアン径約20μm
  - ④金属被覆無機顔料 (黄色): 商品名「Paliocrom Gold L2022」、BASF 株式会社製、メジアン径約16μm
- 20 (水溶性樹脂)

25

- ①ラムザンガム:商品名「K7C233」 三晶株式会社製
- ②ウェランガム:商品名「K1C376」、 三晶株式会社製
- ③カルボキシメチルセルロース (CMC): 商品名「セロゲン7A」、数平均分子量27000~33000、第一工業製薬株式会社製
  - ④ザンサンガム:商品名「ケルザン」、ケルコ社製
    - ⑤ポリアクリル酸:商品名「カーボポール940」、BF Goodrich 社製
    - ⑥サクシノグリカン:商品名「レオザン」、三晶株式会社製

# (水溶性有機溶剤)

①グリセリン

- ②ジプロピレングリコールモノプロピルエーテル
- ③ジプロピレングリコールモノメチルエーテル
- ④プロピレングリコール

# (着色剤)

- 5 ①黄色染料:商品名「黄色202号の(1)」、Acid Yellow 73、アイゼン 株式会社製
  - ②赤色染料:商品名「Chugai Aminol Fast pink R」、キサンテン系、中外 化成株式会社製
- ③青色顔料:商品名「ファーストゲンブルーTGR」、フタロシアニンブル10 一、大日本インキ化学工業株式会社製
  - ④黄色顔料:商品名「セイカファストエローA-3」、アゾ系、大日精化株式会社製
  - ⑤黄色樹脂エマルジョン:商品名「LUMIKOL NKW-2105」、 黄色の蛍光顔料、日本蛍光化学株式会社製
  - ⑥青色樹脂エマルジョン:商品名「LUMIKOL NKW-2108」、 青色の蛍光顔料、日本蛍光化学株式会社製
  - ⑦白色顔料:商品名「クロノス-KR380」、酸化チタン、チタン工業株式会社製

## (顔料ベース)

20 ①顔料ベース:顔料ベースの顔料分散体は、上記の青色顔料③と下記の顔料分散用樹脂を次の割合にて混合したものにトリエチルアミンを加えて溶解した後、ボールミルにて分散を行い、平均粒子径0.08μm、固形分濃度10重量%の顔料水分散体として得た。なお、顔料分散用樹脂としてスチレンーアクリル共重合体(商品名「ジョンクリル J683」、ジョンソンポリマー社製、重量平均分子量:8000)を用いた。

青色顔料③

5重量部

顔料分散用樹脂

1重量部

②顔料ベース:顔料ベースの顔料分散体は、上記の黄色顔料④と下記の顔料分散用樹脂を次の割合にて混合したものにトリエチルアミンを加えて溶解した

後、ボールミルにて分散を行い、平均粒子径 0.08 μm、固形分濃度 10重量%の顔料水分散体として得た。なお、顔料分散用樹脂としてスチレンーアクリル共重合体(商品名「ジョンクリル J683」、ジョンソンポリマー社製、重量平均分子量:8000)を用いた。

5

10

黄色顔料④

5重量部

顔料分散用樹脂

1重量部

顔料ベース③:顔料ベースの顔料分散体は、上記の白色顔料⑦と下記の顔料分散用樹脂を次の割合にて混合したものにトリエチルアミンを加えて溶解した後、ボールミルにて分散を行い、平均粒子径0.4 μm、固形分濃度10重量%の顔料水分散体として得た。なお、顔料分散用樹脂としてスチレンーアクリル共重合体(商品名「ジョンクリル J683」、ジョンソンポリマー社製、重量平均分子量:8000)を用いた。

黄色顔料⑦

5重量部

顔料分散用樹脂

1重量部

**15** (防腐防黴剤)

①  $1, 2-ベンゾイソチアゾリン-3-オン (商品名:「プロクセルGX L」、<math>^+$ スト合成株式会社製)

(防錆剤)

ベンゾトリアゾール

20 (潤滑剤)

25

マレイン酸モノアミド

(試験サンプルの作成)

次に、表1~表10に示した実施例及び比較例の各インキ組成物を、ステンレス製のボールペンチップ (ボール材質;炭化珪素)を一端に連設したポリプロピレン製の中空軸筒よりなるインキ収容部に充填し、このインキ収容部を装填した各試験サンプルのボールペンを作成した。

#### (評価試験)

これらのボールペンを用いて市販のルーズリーフ用紙に筆記し、表1の実施例 及び比較例については各インキ組成物の光輝感及び立体感、表2の実施例及び比

25

較例については各インキ組成物の光輝感についてそれぞれ評価した。また、表3 ~表4の実施例及び比較例については各インキの光輝感及び立体感、表5の実施 例及び比較例については各インキの光輝感、表6の実施例28については各イン キの光輝感及び立体感、表6の実施例29及び30については各インキの光輝感 5 についてそれぞれ評価した。表7の実施例31~34については他の水溶性樹脂 を配合したインキの光輝感及び立体感をそれぞれ評価した。表8の実施例35~ 40についてインキの光輝感及び立体感をそれぞれ評価した。また、表1~表8 の各実施例及び各比較例について筆記性も評価した。また、表9及び表10に示 す樹脂エマルジョンを含有する実施例41~49の各インキについてその光輝感 及び立体感、さらには定着性及び筆記適性をそれぞれ評価した。

#### (光輝感の評価)

光輝感は筆記状態を目視観察により行い、光輝感が強いものを〇、光輝感が 小さい又は光輝感がないものを×として評価した。

#### (立体感の評価)

15 また、立体感についても筆記状態を目視観察により行い、立体感があるものを O、立体感がないものを×として評価した。

#### (筆記性の評価)

筆記性については、筆記した際の感覚により、筆記性がよく、滑らかに筆記で きるものを○、筆記性が低く、あまり滑らかに筆記できないものを×として評 20 価した。

#### (定着性試験)

表9及び表10に示す定着性は、各実施例及び各比較例に係る試験サンプルの ボールペンを用いて市販のルーズリーフ用紙に筆記し乾燥後、その筆跡の上に市 販のセロテープを貼り、剥がした後の状態を目視で観察し、以下の評価基準によ り定着性を評価した。

- ・〇:筆跡上にガラスフレーク顔料が残存し、セロテープを剥がす前の光輝 感が失われていない。
- ・×:筆跡上にガラスフレーク顔料が剥がれ、セロテープを剥がす前の光輝 感が失われている。

## (筆記適性試験)

表9及び表10に示す筆記適性は、実施例及び比較例に係る試験サンプルのボールペンを用いて市販のルーズリーフ用紙に筆記し、その書き味を以下の評価基準により評価して、筆記適性を評価した。

5 ・〇:書き味が滑らかである。

・×:書き味が重く、インキが追従してこない。また、2重線になっている 筆跡が得られた。

表1~表10は、各実施例及び各比較例の光輝感、立体感及び筆記性の結果を 示している。

10

15

20

表1より、実施例1及び実施例2は太陽が輝くような強い光輝感及び強い立体 感のある筆跡が得られた。また、実施例3及び実施例4は夜空に輝く星のような 強い光輝感及び強い立体感のある筆跡が得られた。また、実施例5は、内側に光 輝感及び立体感の塗膜、外側に赤色の二重発色の筆跡が得られた。これに対して 比較例1及び比較例2は光輝感が小さく弱い筆跡は得られたが、立体感はなかっ た。なお、実施例1~5のインキの筆記性は、比較例1~2と同様に良好であっ た。

表2より、光輝性顔料として金属被覆無機顔料が含まれている実施例6~9は 光輝感の強い金色筆跡が得られた。また同じく光輝性顔料として金属被覆無機顔料が含まれている実施例10は、内側に光輝感の塗膜、外側に赤色の二重発色の筆跡が得られた。これに対して、光輝性顔料としてアルミニウム粉顔料が含まれている比較例3は、金色のメタリック調の筆跡は得られたが、光輝感は小さく弱かった。なお、実施例6~10のインキの筆記性は、比較例3と同様に良好であった。

25 ガラスフレーク顔料が含まれる実施例 1~5のインキ組成物は、比較例 1 及び 比較例 2 の様に光輝性顔料を用いずに、ガラスフレーク顔料及び着色剤を配合す ることによって強い光輝感と強い立体感を備えた筆跡を得ることができるので、 従来にない独特の趣向のある筆跡が得られる。

また、光輝性顔料として金属被覆無機顔料が含まれた実施例6~10のインキ

が低かった。

組成物は、強い立体感は得られないものの、比較例3のインキ組成物と比較して、 光輝性が失われることなく、強い 光輝感を持つ 筆跡乃至塗膜を得ることができる。

表3より、ガラスフレーク顔料が含まれる実施例11及び実施例12の各イン

キは、実施例1及び実施例2の各インキと同様に、太陽が輝くような強い光輝感 5 及び強い立体感のある筆跡が得られた。また、実施例13及び実施例14の各イ ンキでは、実施例3及び実施例4の各インキと同様に、夜空に輝く星のような強 い光輝感及び強い立体感のある筆跡が得られた。また、実施例15のインキは、 実施例10のインキと同様に、内側に光輝感の塗膜、外側に赤色の二重発色の筆 10 跡が得られた。これらの実施例11~15の各インキは筆記性も良好であった。 表4より、ガラスフレーク顔料がインキ組成物全量中0.01~40重量%含 まれている実施例16~19の各インキでは、筆記性が良好で、かつ強い光輝感 及び立体感のある筆跡が得られた。これに対して、ガラスフレーク顔料がインキ 組成物全量中0.01重量%未満の比較例4のインキでは、強い光輝感が得られ ず、光輝感が小さく弱かった。また比較例4のインキは立体感も弱く、低下して 15 いた。一方、ガラスフレーク顔料がインキ組成物全量中40重量%を超えて含ま れている比較例5のインキは、強い光輝感と強い立体感を有しているが、筆記性

表5より、光輝性顔料として金属被覆無機顔料がインキ組成物全量中0.01 ~40重量%含まれた実施例20~23の各インキでは、筆記性が良好で、かつ強い光輝感のある筆跡が得られた。これに対して、金属被覆無機顔料がインキ組成物全量中0.01未満の比較例6のインキは、強い光輝感が得られず、光輝感が小さく弱かった。一方、金属被覆無機顔料がインキ組成物全量中40重量%を超えて含まれている比較例7のインキは、強い光輝感を有しているが、筆記性が25 低かった。

表6より、実施例24~28の各インキでは、蛍光色のある強い光輝感及び立体感のある筆跡が得られた。また、実施例29及び実施例30の各インキでは、強い光輝感を有する金色の筆跡で、蛍光色の筆跡が得られた。またこれらのインキの場合、筆記性も良好であった。

25

5

表7より、ザンサンガム、ポリアクリル酸、サクシノグリカンの各水溶性樹脂を配合した実施例31~34の各インキでも、強い光輝感及び立体感のある筆跡が得られた。また、表8より、アルミニウム粉顔料、酸化チタン等が含まれる実施例35~40のインキでは、隠蔽性が大きいため、黒紙の上に書いても筆跡の色がはっきり出ており、かつ強い光輝感と立体感があって、キラキラとした筆跡であった。

表9及び表10より、実施例 $41\sim49$ に係る光輝性水性インキ組成物では、宝石のアクアマリンをイメージする光輝性を発現するとともに、定着性及び筆記 適性が良好である。

10 一方、比較例 8 では、宝石のアクアマリンをイメージする光輝性や立体感は得られたが、定着性が全くない。比較例 9 では、宝石のアクアマリンをイメージする光輝性や立体感は得られ、筆記適性は良好であるが、定着性が全くない。また、比較例 1 0 では、宝石のアクアマリンをイメージする光輝性や立体感は得られ、定着性も良好であるが、筆記適性が悪い。

また、表10により、本実施例のインキ組成物では、合成樹脂エマルジョンは、インキ組成物全量に対して固形分で0.01~40重量%含まれていることが好適であることが認められる。また、本発明のインキ組成物では、ガラスフレーク顔料はインキ組成物全量に対して0.01~40重量%含まれていることが好適であることが認められる。

20 なお、上記各実施例はボールペン用インキ組成物として適用したものであるが 、その他の筆記具、印刷インキ、塗料関連分野、化粧品関連分野などにも用いる ことができる。

本発明は、必須成分として、ガラスフレーク顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤、及び水を含んでなる光輝性水性インキ組成物であるので、従来の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、より強い光輝感と立体感を持つ従来にない独特の筆跡乃至塗膜を得ることができる。特に、ガラスフレーク顔料とともに着色剤が含まれた上記の光輝性水性インキ組成物の場合、その着色剤の色相等に応じた強い輝きを筆跡や塗膜に与えることができる。

また、金属被覆無機顔料を光輝性顔料として配合し、水溶性樹脂、水溶性有機

10

15

溶剤及び水を少なくとも含んでなる光輝性水性インキ組成物は、従来の光輝性顔料を用いた水性インキ組成物と比較して、光輝性が失われることなく、強い光輝感を持つ筆跡乃至塗膜を得ることができる。また、金属被覆無機顔料とともに着色剤が含まれた上記の光輝性水性インキ組成物の場合、その着色剤の色相等に応じた強い輝きを筆跡や塗膜に与えることができる。

また、必須成分として、ガラスフレーク顔料、水溶性増粘樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含み、ガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に定着させるバインダー成分、好適には合成樹脂エマルジョンを含んでなる光輝性水性インキ組成物は、インキ特性や筆記適性を低下させることなく、しかもガラスフレーク顔料配合による強い光輝感と立体感の効果を阻害することなく、筆跡乃至塗膜に対するガラスフレーク顔料の定着性を向上さることができ、より強い光輝感と立体感を筆跡乃至塗膜に与え続けることができる。

なお、本出願の明細書には、本出願の優先権主張の基礎とされた特願平 11-76868号、特願平 11-360187号、特願平 2000-2370号および特願平 2000-2344号 に記載された内容と同一の内容がすべて含まれる。

#### クレーム

1. 必須成分として、ガラスフレーク顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤及び水が含まれている光輝性水性インキ組成物。

5

- 2. 必須成分として、金属被覆無機顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤及び 水が含まれている光輝性水性インキ組成物。
- 3. 必須成分として、ガラスフレーク顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤、 10 水及び着色剤が含まれている光輝性水性インキ組成物。
  - 4. 必須成分として、金属被覆無機顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤、水及び着色剤が含まれている光輝性水性インキ組成物。
- 15 5. ガラスフレーク顔料が、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれている請求項1記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 6. 金属被覆無機顔料が、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれている請求項2記載の光輝性水性インキ組成物。

20

- 7. 上記ガラスフレーク顔料のメジアン径は $5 \sim 100 \mu m$ である請求項1記載の光輝性水性インキ組成物。
- 8. 上記金属被覆無機顔料のメジアン径は5~100μmである請求項225 記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 9. 水溶性樹脂が、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれている請求項1記載の光輝性水性インキ組成物。

- 10. 水溶性樹脂が、インキ組成物全量中0.01~40重量%含まれている請求項2記載の光輝性水性インキ組成物。
- 11. さらに、着色剤がインキ組成物全量中0.01~30重量%含まれて 5 いる請求項1記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 12. さらに、着色剤がインキ組成物全量中0.01~30重量%含まれている請求項2記載の光輝性水性インキ組成物。
- 10 13. さらに、隠蔽性顔料が含まれている請求項1記載の光輝性水性インキ 組成物。
  - 14. さらに、隠蔽性顔料が含まれている請求項2記載の光輝性水性インキ組成物。

15. 必須成分として、ガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に定着させるバインダー成分を含有してなる請求項1記載の光輝性水性インキ組成物。

- 16. 上記バインダー成分として合成樹脂エマルジョンを含有してなる請求 20 項15記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 17. 上記合成樹脂エマルジョンが、インキ組成物全量に対して固形分で 0.01~40重量%含まれている請求項16記載の光輝性水性インキ組成物。
- 25 18. インキ組成物全量に対して、ガラスフレーク顔料が0.01~40重量%、水溶性増粘樹脂が0.01~40重量%、水溶性有機溶剤が1~40重量%含まれている請求項16記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 19. 上記合成樹脂エマルジョンが、アニオン性又はノニオン性を有し、か

つ最低造膜温度は20°C以下である請求項16記載の光輝性水性インキ組成物。

- 20. さらに、着色剤がインキ組成物全量に対して0.01~30重量%含 5 まれている請求項16記載の光輝性水性インキ組成物。
  - 21. さらに、隠蔽性顔料が含まれている請求項16記載の光輝性水性インキ組成物。

# 開示内容の要約

本発明の光輝性インキ組成物は、必須成分として、ガラスフレーク顔料、水溶性樹脂、水溶性有機溶剤及び水を含み、上記ガラスフレーク顔料がインキ組成物全量中 $0.01\sim40$ 重量%であり、さらに上記ガラスフレーク顔料を筆跡乃至塗膜に定着させるバインダー成分として合成樹脂エマルジョンをインキ組成物全量に対して固形分で $0.01\sim40$ 重量%含有している。上記合成樹脂エマルジョンはアニオン性又はノニオン性を有し、最低造膜温度が20  $^{\circ}$   $^$ 

Express Malf maline and ELA355A2O39US

Date of Deposit 3 May(0.00)

I hereby certify that this paper of the is balle to posited with the United States Penal Series 37 CM

All Post Office to Addressed control and 37 CM

1 10 on the date indicated these and is addressed to the control of the